

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
20. September 2001 (20.09.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/68616 A1

(51) Internationale Patentklassifikation: C07D 251/18,
409/12, 417/12, A01N 43/70

Unterhüschterhof 15, 42799 Leichlingen (DE), LÖSEL,
Peter [GB/DE]; Grabenstr. 23, 40789 Monheim (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/02439

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
5. März 2001 (05.03.2001)

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
CZ, DE, DK, DM, DZ, EF, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,
TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
100 12 820.3 16. März 2000 (16.03.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW),
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,
TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK,
ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR),
OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): HERRMANN,
Stefan [DE/DE]; Vimeburgstr. 4a, 40764 Langenfeld
(DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; Heimatstr.
1, 56242 Selters (DE). KATHER, Kristian [DE/DE];
Nesselrodestr. 20a, 50735 Köln (DE). LEHR, Stefan
[DE/DE]; Ricarda-Huch-Str. 38, 40764 Langenfeld (DE).
DREWES, Mark-Wilhelm [DE/DE]; Goethestr. 38,
40764 Langenfeld (DE). DAHMEN, Peter [DE/DE];
Altebrücker Str. 61, 41470 Neuss (DE). FEUCHT,
Dieter [DE/DE]; Ackerweg 9, 40789 Monheim (DE).
PONTZEN, Rolf [DE/DE]; Am Kloster 69, 42799
Leichlingen (DE). ERDELEN, Christoph [DE/DE];

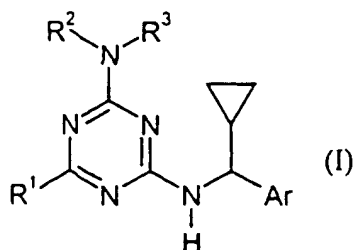
Veröffentlicht:

-- mit internationalem Recherchenbericht
vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen
eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: SUBSTITUTED 1-ARYL-CYCLOPROPYLMETHYLAMINO-1,3,5-TRIAZINES

(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE 1-ARYL-CYCLOPROPYLMETHYLAMINO-1,3,5-TRIAZINE



(57) Abstract: The invention relates to novel, substituted 1-aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazines of the general formula (I), wherein the groups R¹, R², R³ and Ar are defined as in the description. The invention further relates to a method and to intermediates for producing the same and to their use as herbicides and insecticides.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft neue, substituierte 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I), in welcher die Reste R¹, R², R³ und Ar, die in der Beschreibung angegebene Bedeutung haben, ein Verfahren und Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide und Insektizide.

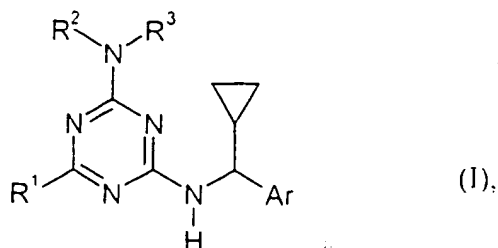
BEST AVAILABLE COPY

Substituierte 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine

Die Erfindung betrifft neue substituierte 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine. Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Pflanzenbehandlungsmittel, insbesondere als Herbizide und als Insektizide.

Eine Reihe von 1-Aryl-alkylamino-1,3,5-triazinen ist bereits aus der (Patent-)Literatur bekannt (vgl. US-A-3816419, US-A-3932167, WO-A-98/15536, WO-A-98/42684, WO-A-99/18100). Diese Verbindungen haben jedoch bisher keine besondere Bedeutung erlangt.

Es wurden nun die neuen substituierten 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I)



in welcher

Ar für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Nitro, Cyano, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyridinyl oder Pyrimidinyl steht,

R¹ für Wasserstoff, Halogen, jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-

Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen steht.

R² für Wasserstoff oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht, und

10 R³ für Wasserstoff, Formyl, jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl, oder Phenylcarbonyl steht,

15 gefunden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) enthalten mindestens ein asymmetrisch substituiertes Kohlenstoffatom und können deshalb in verschiedenen enantiomeren (R- und S-konfigurierten) bzw. diastereomeren Formen

20 vorliegen. Die Erfindung betrifft sowohl die verschiedenen möglichen einzelnen enantiomeren bzw. stereoisomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wie auch die Gemische dieser stereoisomeren Verbindungen.

Sofern die Reste R¹, R² und R³ für Substituenten mit asymmetrisch substituierten Kohlenstoffatomen stehen, sind sowohl die jeweils möglichen Diastereomeren-

25 gemische als auch die einzelnen möglichen Diastereomeren Gegenstand der Erfindung.

Bevorzugte Substituenten bzw. Bereiche der in den oben und nachstehend aufgeführten Formeln vorhandenen Reste werden im Folgenden beschrieben.

30

- Ar steht bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Nitro, Cyano, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Chlordifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Chlor-difluormethylsulfonyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyridinyl oder Pyrimidinyl.
- 15 R¹ steht bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder jeweils gegebenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl.
- 20 R² steht bevorzugt für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl oder Ethyl.

- 5 R^3 steht bevorzugt für Wasserstoff, für Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, oder für Phenylcarbonyl.
- 10 Ar steht besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Thienyl, Thiazolyl oder Pyridinyl.
- 15 R^1 steht besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl.
- 20 R^2 steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl.
- 25 R^3 steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Methyl oder Ethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl.
- 30

- Ar steht ganz besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, 5 Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Phenyl oder Thienyl.
- R¹ steht ganz besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n-, i- oder cyclo-Propyl. 10
- R² steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff.
- 15 R³ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, für Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, oder für Phenylcarbonyl.
- 20 Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.
- 25 Erfindungsgemäß bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

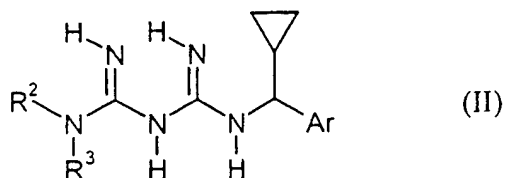
Erfindungsgemäß besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

- 5 Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), bei welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

10 Die neuen substituierten 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I) weisen interessante biologische Eigenschaften auf. Sie zeichnen sich insbesondere durch starke herbizide und durch insektizide Wirksamkeit aus.

Man erhält die substituierten 1-Aryl-cyclopropylmethylamino-1,3,5-triazine der allgemeinen Formel (I), wenn man Biguanide der allgemeinen Formel (II)

15



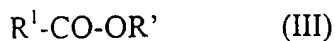
in welcher

Ar, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben,

20

- und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (II) -

mit Alkoxycarbonylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



25

in welcher

R¹ die oben angegebene Bedeutung hat und

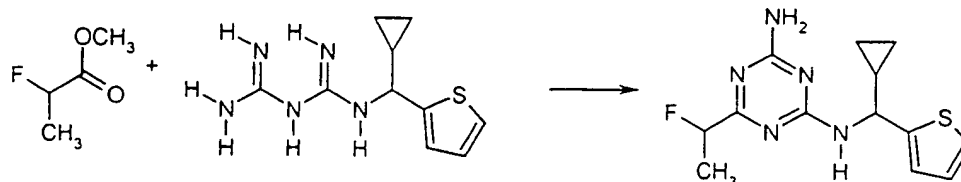
R' für Alkyl steht.

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

5

und gegebenenfalls an den so erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition weitere Umwandlungen nach üblichen Methoden durchführt.

10 Verwendet man beispielsweise 1-(Thien-2-yl-cyclopropyl-methyl)-biguanid und 2-Fluor-propansäure-methylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren durch das folgende Formelschema skizziert werden:



15

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Biguanide sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der allgemeinen Formel (II) haben Ar, R² und R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für Ar, R² und R³ angegeben worden sind.

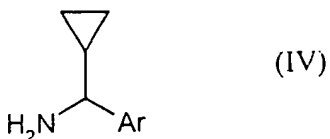
20

Geeignete Säureaddukte von Verbindungen der Formel (II) sind deren Additionsprodukte mit Protonensäuren, wie z.B. mit Chlorwasserstoff (Hydrogenchlorid), Bromwasserstoff (Hydrogenbromid), Schwefelsäure, Methansulfonsäure, Benzolsulfonsäure und p-Toluolsulfonsäure.

25

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

5 Man erhält die neuen Biguanide der allgemeinen Formel (II), wenn man Aryl-cyclopropyl-methylamine der allgemeinen Formel (IV)



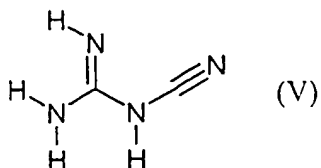
in welcher

Ar die oben angegebene Bedeutung hat,

10

- und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (IV), wie z.B. die Hydrochloride -

mit Cyanoguanidin („Dicyandiamid“) der Formel (V)



15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B. Hydrogenchlorid, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Toluol, n-Decan oder 1,2-Dichlor-benzol, bei Temperaturen zwischen 100°C und 200°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

20

Die Biguanide der allgemeinen Formel (II) können nach ihrer Herstellung auch ohne Zwischenisolierung direkt zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) nach dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt werden.

Die als Vorprodukte benötigten Arylalkylamine der allgemeinen Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. DE-A-2526965, US-A-3781443, US-A-3840524, Herstellungsbeispiele).

- 5 Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Alkoxycarbonylverbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der allgemeinen Formel (III) hat R^1 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt
10 für R^1 angegeben worden sind; R^2 steht vorzugsweise für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

- Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannte Syntheschemikalien.
15

- Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung eines Verdünnungsmittels durchgeführt. Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens
20 kommen neben Wasser vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan,
25 Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmono-
30

methylether. Ethylenglykolmonoethylether. Diethylenglykolmonomethylether. Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Als Reaktionshilfsmittel für das erfindungsgemäße Verfahren kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säureakzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Kalium-methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methylpyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2.2.2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]-undec-7-en (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, das erfindungsgemäße Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart
5 eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliantes, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden.
10 Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

15 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Abutilon, Amaranthus, Ambrosia, Anoda, Anthemis, Aphanes, Atriplex, Bellis, Bidens, Capsella, Carduus, Cassia, Centaurea,
20 Chenopodium, Cirsium, Convolvulus, Datura, Desmodium, Emex, Erysimum, Euphorbia, Galeopsis, Galinsoga, Galium, Hibiscus, Ipomoea, Kochia, Lamium, Lepidium, Lindernia, Matricaria, Mentha, Mercurialis, Mullugo, Myosotis, Papaver, Pharbitis, Plantago, Polygonum, Portulaca, Ranunculus, Raphanus, Rorippa, Rotala, Rumex, Salsola, Senecio, Sesbania, Sida, Sinapis, Solanum, Sonchus, Sphenoclea,
25 Stellaria, Taraxacum, Thlaspi, Trifolium, Urtica, Veronica, Viola, Xanthium.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Arachis, Beta, Brassica, Cucumis, Cucurbita, Helianthus, Daucus, Glycine, Gossypium, Ipomoea, Lactuca, Linum, Lycopersicon, Nicotiana, Phaseolus, Pisum, Solanum, Vicia.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Aegilops, Agropyron, Agrostis, Alopecurus, Apera, Avena, Brachiaria, Bromus, Cenchrus, Commelina, Cynodon, Cyperus, Dactyloctenium, Digitaria, Echinochloa, Eleocharis, Eleusine, Eragrostis, Eriochloa, Festuca, Fimbristylis, Heteranthera, Imperata, Ischaemum, Leptochloa, Lolium, Monochoria, Panicum, Paspalum, Phalaris, Phleum, Poa, Rottboellia, Sagittaria, Scirpus, Setaria, Sorghum.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Allium, Ananas, Asparagus, Avena, Hordeum, Oryza, Panicum, Saccharum, Secale, Sorghum, Triticale, Triticum, Zea.

10

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

15 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung, z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-,
20 Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen sowie zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeigen starke herbizide Wirksamkeit und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf dem Boden und auf
25 oberirdische Pflanzenteile. Sie eignen sich in gewissem Umfang auch zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen, sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in bestimmten Konzentrationen bzw.
30 Aufwandmengen auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen und pilzlichen oder bakteriellen Pflanzenkrankheiten verwendet werden. Sie lassen sich gegebenen-

falls auch als Zwischen- oder Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

5 Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch
10 Sortenschutzrechte schützbaeren oder nicht schützbaeren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Sproß, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stengel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.
15

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.
20

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.
25

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-
5 den Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-
10 naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester. Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare
15 Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse
20 Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum-
25 erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden und/oder mit Stoffen, welche die Kulturpflanzen-Verträglichkeit verbessern („Safenem“) zur Unkrautbekämpfung verwendet werden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind. Es sind also auch Mischungen mit Unkrautbekämpfungsmitteln möglich, welche ein oder mehrere bekannte Herbizide und einen Safencer enthalten.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Acetochlor, Acifluorfen (-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim (-sodium), Ametryne, Amicarbazone, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Bflubutamid, Benazolin (-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron (-methyl), Bentazon, Benzfendizone, Benzobicyclon, Benzofenap, Benzoylprop (-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispiribac (-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butafenacil (-allyl), Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone (-ethyl), Chlormethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron (-ethyl), Chlormitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cini-don (-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clefoxydim, Clethodim, Clodinafop

(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron (-methyl), Cloransulam (-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop (-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Dichlorprop (-P), Diclofop (-methyl), Diclosulam, Diethatyl (-ethyl), Difenzoquat, 5 Diflufenican, Diflufenzopyr, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epropodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron (-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen, Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop (-P-ethyl), Fentrazamide, Flamprop (-isopropyl, -isopropyl-L, -methyl), Flazasulfuron, 10 Florasulam, Fluazifop (-P-butyl), Fluazolate, Flucarbazone (-sodium), Flufenacet, Flumetsulam, Flumiclorac (-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumetsulam, Flumeturon, Fluorochloridone, Fluoroglycofen (-ethyl), Flupoxam, Flupropacil, Flurpysulfuron (-methyl, -sodium), Flurenol (-butyl), Fluridone, Fluroxypyr (-butoxypropyl, -meptyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet (-methyl), Fluthiamide, Fomesafen, 15 Foramsulfuron, Glufosinate (-ammonium), Glyphosate (-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop (-ethoxyethyl, -P-methyl), Hexazinone, Imazamethabenz (-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin, Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron (-methyl, -sodium), Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Lactofen, 20 Lenacil, Linuron, MCPA, Mecoprop, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-) Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metsulfuron (-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxadiazon, Oxasulfuron, Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendimethalin, Pendralin, Pentoxazone, Phenmedipham, Picolinafen, 25 Piperophos, Pretilachlor, Primisulfuron (-methyl), Profluazol, Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Procarbazone (-sodium), Propyzamide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen (-ethyl), Pyrazogyl, Pyrazolate, Pyrazosulfuron (-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyridatol, Pyritalid, 30 Pyriminobac (-methyl), Pyrithiobac (-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop (-P-ethyl, -P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine,

Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron (-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tcbuthiuron, Tepraloxydim, Terbuthylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron (-methyl), Thiobencarb, Tio-
carbamil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron (-methyl), Triclopyr, Tri-
5 diphane, Trifluralin, Trifloxysulfuron, Triflusulfuron (-methyl), Tritosulfuron.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

10

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen,
15 Sprühen, Streuen.

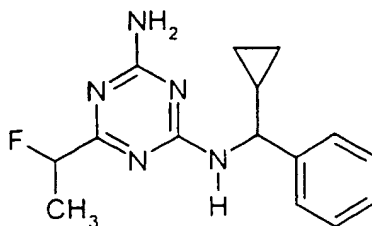
Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

20

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

25

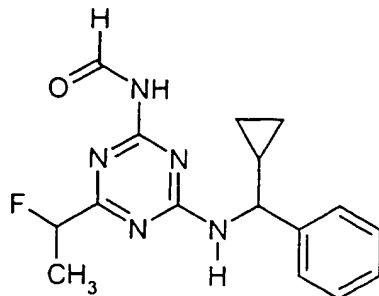
Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:**Beispiel 1**

- 5 10,0 g (37,5 mMol) 1-(Phenyl-cyclopropyl-methyl)-biguanid-Hydrochlorid werden
in 80 ml Methanol vorgelegt und mit 5,0 g (47 mMol) 2-Fluor-propansäure-methyl-
ester (racemisch) versetzt. Zu dieser Mischung werden unter Rühren 7.2 ml einer
30%igen Lösung von Natriummethanolat in Methanol tropfenweise gegeben. Die
Reaktionsmischung wird dann 15 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt.
10 anschließend mit etwa gleichen Volumenmengen Wasser und Methylenchlorid auf
etwa das dreifache Volumen verdünnt und gut durchgeschüttelt. Die organische
Phase wird abgetrennt und die wässrige Phase noch zweimal mit Methylenchlorid
nachextrahiert. Die vereinigten organischen Phasen werden mit Natriumsulfat ge-
trocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel unter vermindertem Druck
15 sorgfältig abdestilliert.

Man erhält 5,8 g (54 % der Theorie) N²-(Cyclopropyl-phenyl-methyl)-6-(1-fluor-ethyl)-1,3,5-triazin-2,4-diamin (Racemat) als amorphen Rückstand.

- 20 LogP (bei pH=2,3): 1,69.

Beispiel 2

5 Eine Mischung aus 5,8 g (20 mMol) N²-(Cyclopropyl-phenyl-methyl)-6-(1-fluor-ethyl)-1,3,5-triazin-2,4-diamin (racemisch), 2,8 g (23,5 mMol) N,N-Dimethyl-formamid-dimethylacetal und 50 ml 1,4-Dioxan wird 15 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt, anschließend mit 150 ml Wasser und 5 ml konz. Salzsäure verdünnt und weitere zwei Stunden gerührt. Das kristallin angefallene Produkt wird dann durch Absaugen isoliert.

10

Man erhält 2,6 g (41 % der Theorie) N-[4-(Cyclopropyl-phenyl-methylamino)-6-(1-fluor-ethyl)-1,3,5-triazin-2-yl]-formamid (Racemat) vom Schmelzpunkt 148°C.

LogP (bei pH=2,3): 2,53.

15

Analog zu den Beispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung des erfindungsgemäßen Herstellungsverfahrens können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (I) hergestellt werden. Soweit nicht anders angegeben ist, handelt es sich hierbei um racemische Verbindungen bzw. Diastereomergemische.

20

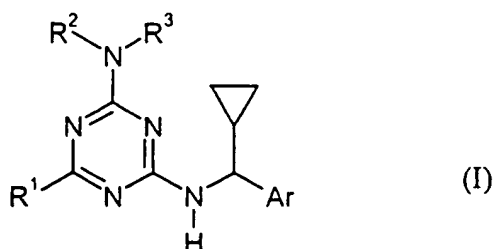
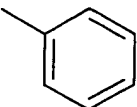
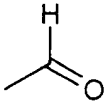
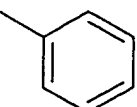
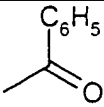
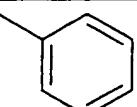
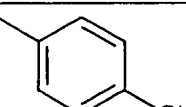
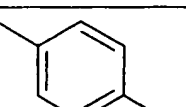

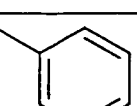
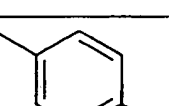
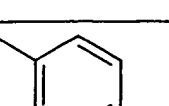
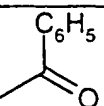
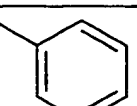
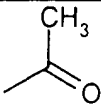
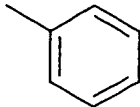
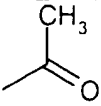
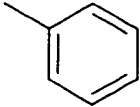
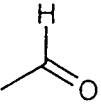
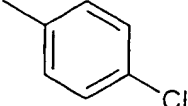
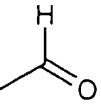
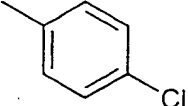
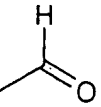
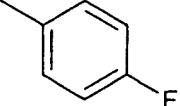
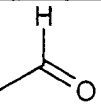
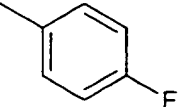

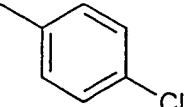

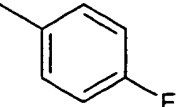
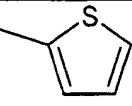
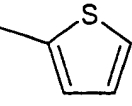

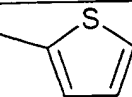
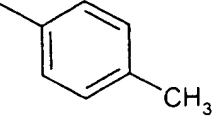
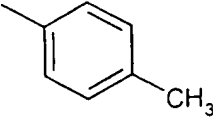

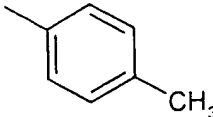
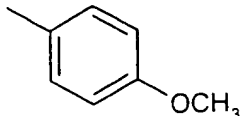
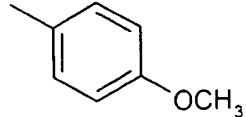

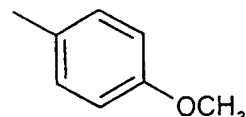


Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	Ar	Physikal. Daten
3	CF(CH ₃) ₂	H	H		logP = 1,78 ^{a)}
4	CF(CH ₃) ₂	H			Fp.: 125°C
5	CHFCH ₃	H			logP = 3,12 ^{a)}
6	CHFCH ₃	H	H		logP = 2,08 ^{a)}
7	CF(CH ₃) ₂	H	H		logP = 2,12 ^{a)}
8		H	H		logP = 1,86 ^{a)}
9	CHFCH ₃	H	H		logP = 1,82 ^{a)}
10	CF(CH ₃) ₂	H	H		logP = 1,88 ^{a)}
12	CF(CH ₃) ₂	H			

Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	Ar	Physikal. Daten
13	CHFCH ₃	H			
14	CF(CH ₃) ₂	H			
15	CHFCH ₃	H			
16	CF(CH ₃) ₂	H			
17	CHFCH ₃	H			
18	CF(CH ₃) ₂	H			
19		H	H		
20		H	H		
21	CHFCH ₃	H	H		Log. P = 1,96 ^{a)}
22	CF(CH ₃) ₂	H	H		

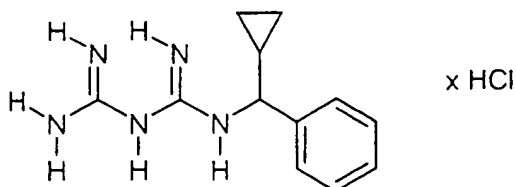
Bsp.- Nr.	R ¹	R ²	R ³	Ar	Physikal. Daten
23		H	H		
24	CHFCH ₃	H	H		
25	CF(CH ₃) ₂	H	H		
26		H	H		
27	CHFCH ₃	H	H		
28	CF(CH ₃) ₂	H	H		
29		H	H		

Die Bestimmung der in Tabelle 1 angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- (a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1% wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit ^{a)} markiert.
- 5 (b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phosphatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit ^{b)} markiert.

10 Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

15 Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)

- 5 Eine Mischung aus 19 g (0,13 Mol) Cyclopropyl-phenyl-methylamin, 250 ml Toluol, 50 ml 1,4-Dioxan und 15,5 g 30%iger Salzsäure wird unter Rückfluß erhitzt, wobei das darin enthaltene Wasser am Wasserabscheider abgetrennt wird. Nach Zugabe von 10,8 g (0,13 Mol) Cyanoguanidin wird die Reaktionsmischung dann zwei Stunden bei 140°C gehalten, anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt, mit Aceton ver-
 10 rührt und das kristalline Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 21,5 g (62 % der Theorie) 1-(Phenyl-cyclopropyl-methyl)-biguanid-Hydrochlorid vom Schmelzpunkt 260°C.

- 15 Analog zu Beispiel (II-1) können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (II) hergestellt werden.

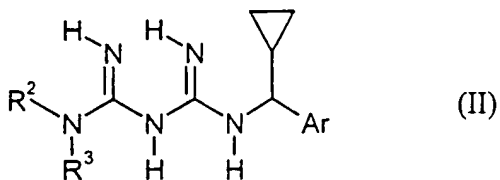
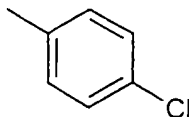
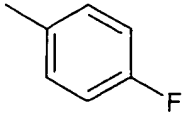
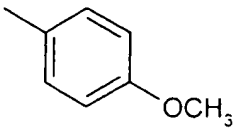
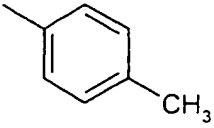
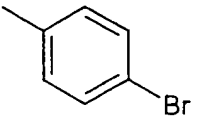
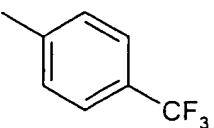
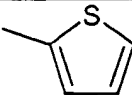
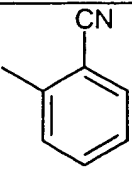
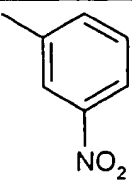
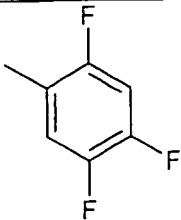
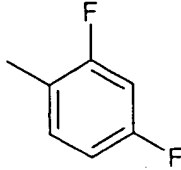
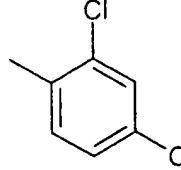
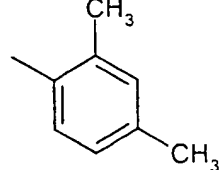
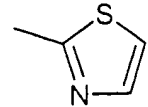
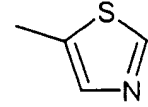
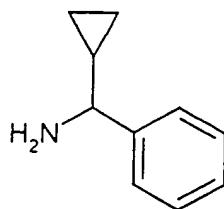


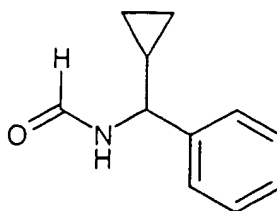
Tabelle 2: Beispiele für die Verbindungen der Formel (II)

Bsp.- Nr.	R ²	R ³	Ar	Physikal. Daten
II-2	H	H		
II-3	H	H		
II-4	H	H		
II-5	H	H		
II-6	H	H		
II-7	H	H		
II-8	H	H		
II-9	H	H		
II-10	H	H		

Bsp.- Nr.	R ²	R ³	Ar	Physikal. Daten
II-11	H	H		
II-12	H	H		
II-13	H	H		
II-14	H	H		
II-15				
II-16				

Ausgangsstoffe der Formel (IV):Beispiel (IV-1)

5

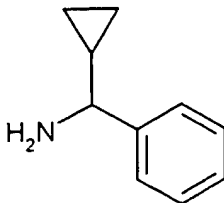
Stufe 1

10 Eine Mischung aus 50 g (0,34 Mol) Cyclopropyl-phenyl-ke-ton und 150 g Formamid wird auf 150°C erhitzt und bei dieser Temperatur werden 50 ml Ameisensäure innerhalb von 60 Minuten tropfenweise dazu gegeben. Die Mischung wird weitere 2 Stunden auf 160°C erhitzt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wird mit etwa gleichen Volumenmengen Wasser und Toluol auf etwa das dreifache Volumen verdünnt, gut durchgeschüttelt, die organische Phase abgetrennt, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel unter vermindertem Druck sorgfältig ab-

15 destilliert.

Man erhält 45 g (76 % der Theorie) N-(Cyclohexyl-phenyl-methyl)-formamid als öligen Rückstand.

20 Dieses Rohprodukt kann ohne weitere Reinigung weiter umgesetzt werden.

Stufe 2

5 Eine Mischung aus 25 g (0,14 Mol) N-(Cyclohexyl-phenyl-methyl)-formamid, 50 ml konz. Salzsäure und 50 ml Wasser wird 60 Minuten unter Rückfluss erhitzt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wird filtriert und das Filtrat durch Zugabe von 20%iger Natronlauge auf den pH-Wert 10 eingestellt. Dann wird mit Toluol extrahiert, die organische Phase mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Aus dem Filtrat wird das Produkt durch Destillation unter vermindertem Druck isoliert.

10

Man erhält 8,0 g (98 % der Theorie) Cyclopropyl-phenyl-methylamin vom Siedepunkt 58°C (bei 1 mbar).

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, dass die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Wirkstoffkonzentration in der Spritzbrühe wird so gewählt, dass in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

20 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

	0 % =	keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
25	100 % =	totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 1, 2, 3, 4, 5, 6 und 7 bei zum Teil guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen, starke Wirkung gegen Unkräuter.

30

Tabelle A1: Pre-emergence-Test Gewächshaus

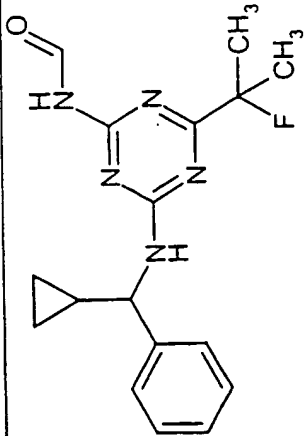
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Mais	Alopecurus	Echinochloa	Amaranthus	Galium
						
(4)	500	0	95	100	100	100

Tabelle A2: Pre-emergence-Test Gewächshaus

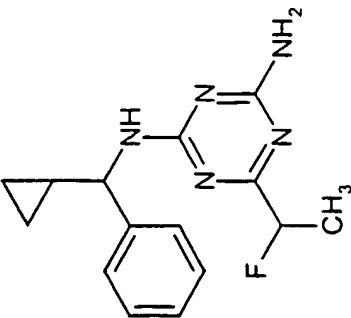
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Amaranthus	Chenopodium	Polygonum	Stellaria
						
(1)	125	100	100	100	100	100

Tabelle A3: Pre-emergence-Test Gewächshaus

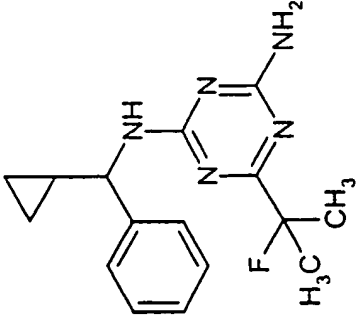
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Weizen	Digitaria	Abutilon	Datura	Ipomoea	Solanum	Viola
	125	10	100	100	100	100	100	100
(3)								

Tabelle A4: Pre-emergence-Test Gewächshaus

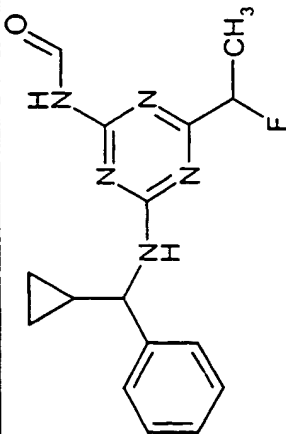
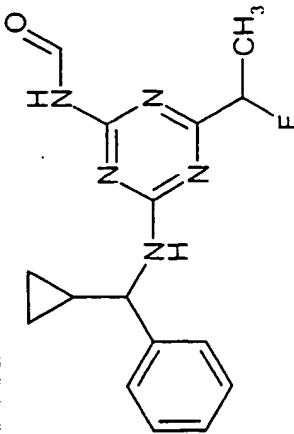
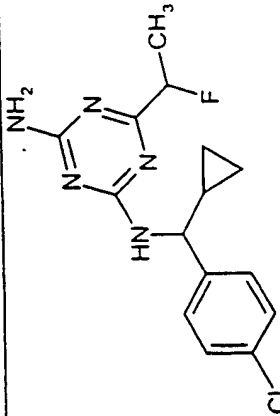
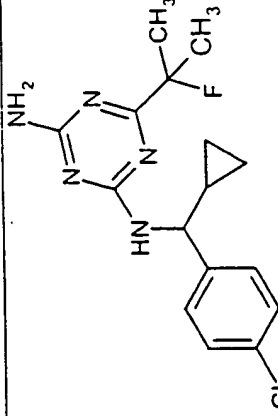
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Echinochloa	Amaranthus	Galium
					
(2)	500	100	100	100	100
					
(5)	500	100	100	100	100

Tabelle A4: Pre-emergence-Test Gewächshaus

Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Echinochloa	Amaranthus	Galium
 (6)	500	95	100	100	100
 (7)	500	80	100	100	100

Beispiel B

Post-emergence-Test

- 5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene
10 Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 bis 15 cm haben so, dass die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, dass in
15 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

20

Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

25

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 1, 2, 3, 4, 5, 6 und 7 starke Wirkung gegen Unkräuter.

Tabelle B1: Post-emergence-Test Gewächshaus

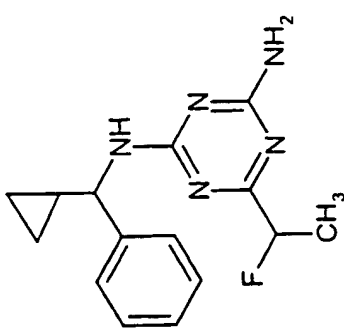
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Avena fatua	Echinochloa	Amaranthus	Ipomoea	Solanum	Viola
							
(1)	500	95	90	100	100	100	100

Tabelle B1: Post-emergence-Test Gewächshaus

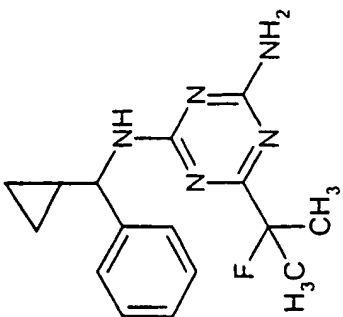
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Avena fatua	Echinochloa	Amaranthus	Ipomoea	Solanum	Viola
 (3)	500	95	90	100	100	100	100

Tabelle B2: Post-emergence-Test Gewächshaus

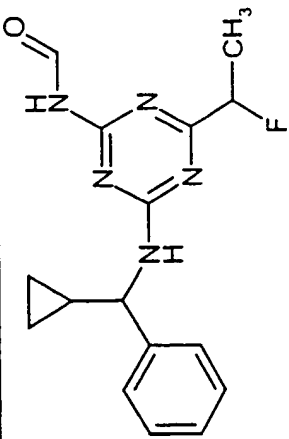
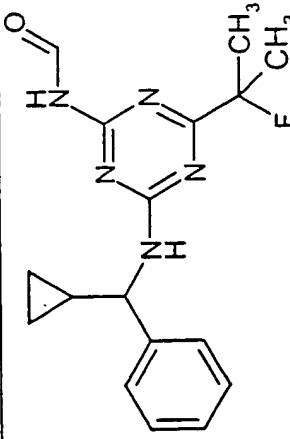
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Setaria	Amaranthus	Ipomoea	Sinapis
 (2)	500	90	95	100	95	100
 (4)	500	90	95	100	100	100

Tabelle B2: Post-emergence-Test Gewächshaus

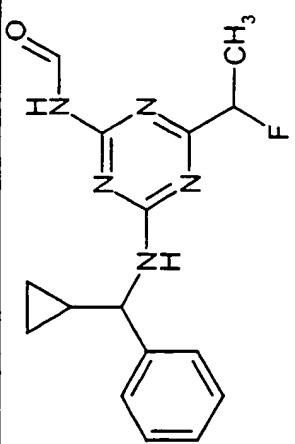
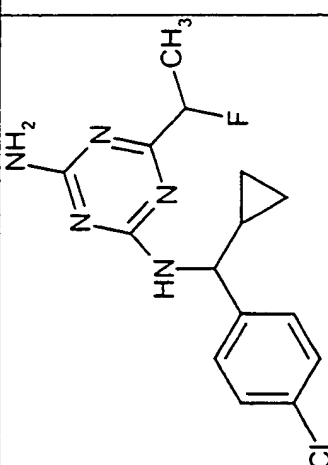
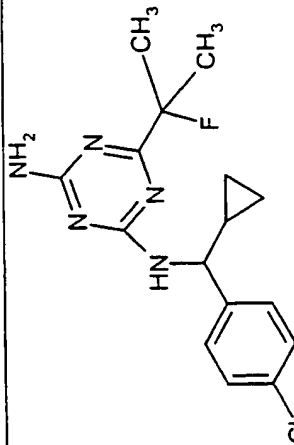
Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Setaria	Amaranthus	Ipomoea	Sinapis
 (5)	500	80	90	100	95	99
 (6)	500	99	100	100	100	100

Tabelle B2: Post-emergence-Test Gewächshaus

Wirkstoff gemäß Herstellungsbeispiel-Nr.	Aufwand- menge (g ai./ha)	Alopecurus	Setaria	Amaranthus	Ipomoea	Sinapis
						
(7)	500	95	100	100	100	100

Beispiel C

Phaedon-Larven-Test

- 5 Lösungsmittel: 31 Gewichtsteile Aceton
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Meerrettichblattkäfer-Larven (*Phaedon cochleariae*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

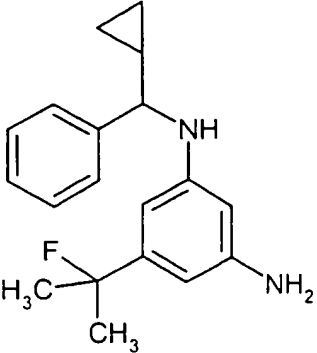
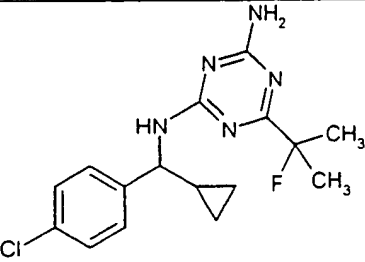
Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, dass alle Käfer-Larven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, dass keine Käfer-Larven abgetötet wurden.

20 In diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 3 und 7 bei einer Wirkstoffkonzentration von 1000 ppm jeweils einen Abtötungsgrad von 100 % nach 7 Tagen.

Tabelle C

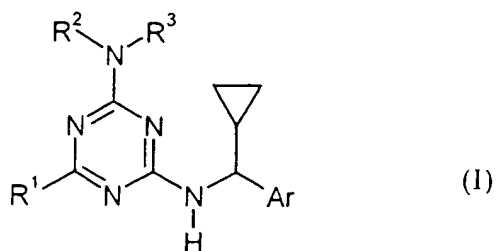
Pflanzenschädigende Insekten

Phaedon-Larven-Test

Wirkstoffe	Wirkstoffkonzentration in ppm	Abtötungsgrad in % nach 7d
		
(3)	1000	100
		
(7)	1000	100

Patentansprüche

1. Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



5 in welcher

Ar für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Nitro, Cyano, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyridinyl oder Pyrimidinyl steht,

15

R¹ für Wasserstoff, Halogen, jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

20

25 R² für Wasserstoff oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und

5 R^3 für Wasserstoff, Formyl, jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl oder C_1 - C_4 -Alkylamino-carbonyl, oder Phenylcarbonyl steht.

2. Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

10 Ar für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Nitro, Cyano, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluor-methoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Methylthio, Ethyl-
15 thio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Pro-pylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Chlordifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Trifluor-methylsulfonyl, Chlor-difluormethylsulfonyl, Acetyl, Propionyl, n-
20 oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Prop-oxycarbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Naphthyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyridinyl oder Pyrimidinyl steht,

25 R^1 für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulf-
30 onyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Bu-tyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulf-

5 onyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,

10 R^2 für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl oder Ethyl steht und

15 R^3 für Wasserstoff, für Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, oder für Phenylcarbonyl steht.

3. Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

20 Ar für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Phenyl oder Phenoxy substituiertes Phenyl, Thienyl, Thiazolyl oder Pyridinyl steht,

30 R^1 für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl,

5 Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, oder gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl steht,

R^2 für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

10 R^3 für Wasserstoff, für Formyl, für Methyl oder Ethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl steht.

15

4. Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

20 Ar für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Phenyl oder Thienyl steht,

25 R^1 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n-, i- oder cyclo-Propyl steht,

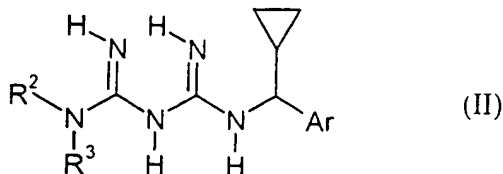
30 R^2 für Wasserstoff steht und

R^3 für Wasserstoff, für Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, oder für Phenylcarbonyl steht.

5

5. Verfahren zum Herstellen von Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

Biguanide der allgemeinen Formel (II),



10

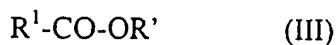
in welcher

Ar, R^2 und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben,

15

- und/oder Säureaddukte von Verbindungen der allgemeinen Formel (II) -

mit Alkoxycarbonylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



20

in welcher

R^1 die oben angegebene Bedeutung hat und

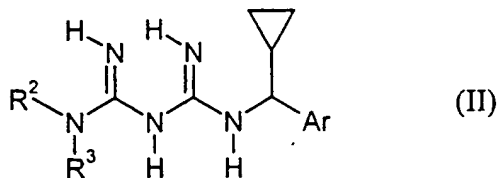
R' für Alkyl steht,

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt werden

und gegebenenfalls an den so erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition weitere Umwandlungen nach üblichen Methoden durchgeführt werden.

- 5 6. Verfahren zum Bekämpfen von unerwünschtem Pflanzenwuchs oder tierischen Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, dass man mindestens eine Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 auf unerwünschte Pflanzen, die tierische Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 10 7. Verwendung von mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 zum Bekämpfen von unerwünschten Pflanzen und/oder tierischen Schädlingen.
- 15 8. Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 und üblichen Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.
- 20 9. Verfahren zum Herstellen von Mitteln, dadurch gekennzeichnet, dass man eine Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 mit üblichen Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
10. Verbindungen der allgemeinen Formel (II),



in welcher

25

Ar, R² und R³ die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter. Appl. No.

PCT/EP 01/02439

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D251/18 C07D409/12 C07D417/12 A01N43/70

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC.

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 196 41 692 A (BAYER AG ;BAYER AGROCHEM KK (JP)) 23 April 1998 (1998-04-23) column 14; claims; examples ---	1-10
Y,P	WO 01 10849 A (DREWES MARK WILHELM ;FEUCHT DIETER (DE); LEHR STEFAN (DE); BAYER A) 15 February 2001 (2001-02-15) claims; examples ---	1-10
Y	DE 199 25 329 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 23 December 1999 (1999-12-23) claims; examples ---	1-10
Y	US 3 830 810 A (BERRER D ET AL) 20 August 1974 (1974-08-20) claims; examples -----	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *Z* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

9 July 2001

Date of mailing of the international search report

16/07/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax. (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Menegaki, F

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family members	Publication date
DE 19641692 A	23-04-1998	AU 729054 B	25-01-2001
		AU 4778997 A	05-05-1998
		BR 9713255 A	03-11-1999
		CN 1233242 A	27-10-1999
		WO 9815536 A	16-04-1998
		EP 0932604 A	04-08-1999
		JP 2001501938 T	13-02-2001

WO 0110849 A	15-02-2001	DE 19936633 A	15-02-2001
		AU 6827300 A	05-03-2001

DE 19925329 A	23-12-1999	AU 4504799 A	05-01-2000
		BR 9911350 A	13-03-2001
		WO 9965882 A	23-12-1999
		EP 1087948 A	04-04-2001

US 3830810 A	20-08-1974	CH 559005 A	28-02-1975
		BE 792101 A	30-05-1973
		CA 983499 A	10-02-1976
		DE 2258243 A	07-06-1973
		FR 2166966 A	17-08-1973
		GB 1386490 A	05-03-1975
		IL 40887 A	31-12-1975
		IT 983175 B	31-10-1974
		JP 48062938 A	01-09-1973
		NL 7215750 A	05-06-1973

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/02439

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D251/18 C07D409/12 C07D417/12 A01N43/70

Nach der internationalen Patenklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoffe (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff genorende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen.

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 196 41 692 A (BAYER AG :BAYER AGROCHEM KK (JP)) 23. April 1998 (1998-04-23) Spalte 14: Ansprüche; Beispiele	1-10
Y.P	WO 01 10849 A (DREWES MARK WILHELM :FEUCHT DIETER (DE); LEHR STEFAN (DE); BAYER A) 15. Februar 2001 (2001-02-15) Ansprüche; Beispiele	1-10
Y	DE 199 25 329 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 23. Dezember 1999 (1999-12-23) Ansprüche; Beispiele	1-10
Y	US 3 830 810 A (BERRER D ET AL) 20. August 1974 (1974-08-20) Ansprüche; Beispiele	1-10

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifeln zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

9. Juli 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

16/07/2001

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Menegaki, F

im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglieder der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 19641692 A		23-04-1998	AU 729054 B	25-01-2001
			AU 4778997 A	05-05-1998
			BR 9713255 A	03-11-1999
			CN 1233242 A	27-10-1999
			WO 9815536 A	16-04-1998
			EP 0932604 A	04-08-1999
			JP 2001501938 T	13-02-2001

WO 0110849 A		15-02-2001	DE 19936633 A	15-02-2001
			AU 6827300 A	05-03-2001

DE 19925329 A		23-12-1999	AU 4504799 A	05-01-2000
			BR 9911350 A	13-03-2001
			WO 9965882 A	23-12-1999
			EP 1087948 A	04-04-2001

US 3830810 A		20-08-1974	CH 559005 A	28-02-1975
			BE 792101 A	30-05-1973
			CA 983499 A	10-02-1976
			DE 2258243 A	07-06-1973
			FR 2166966 A	17-08-1973
			GB 1386490 A	05-03-1975
			IL 40887 A	31-12-1975
			IT 983175 B	31-10-1974
			JP 48062938 A	01-09-1973
			NL 7215750 A	05-06-1973

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☒ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.